

研究課題別評価

1 研究課題名： ハイブリッド型分子動力学シミュレーションの開発

2 研究者氏名： 山本量一

研究員： 名嘉山 祥也（研究期間 H.15.6～H.17.10）

研究員： 金 鋼（研究期間 H.15.4～H.18.3）

3 研究のねらい：

ソフトマターや複雑流体など、機能性材料として期待されている物質の多くは空間的にも時間的にも全くスケールの違う階層構造が混在している場合がほとんどであり、最先端のシミュレーションといえどもすべての階層を同じレベル（計算手法）で取り扱うことは現実問題として不可能である。例えばコロイド粒子や生体分子の溶液の場合、溶媒を構成する分子の大きさや運動の時間スケールがコロイド粒子や生体分子のそれらより何桁も小さく、シミュレーションのスケールを前者にあわせると意味のある結果を得るまでに世界最速のスーパーコンピュータを用いても天文学的な計算時間（ $\sim 10^{20}$ 年）が必要になる。逆にコロイドや生体分子にスケールをあわせると、今度は現実と乖離した仮想的なモデルを用いざるを得ず、実際の物質との対応が希薄になる。このようなマルチスケールの階層性こそがソフトマターのシミュレーションを困難にしている最大の要因となっており、この原理的問題を克服した新しいシミュレーション法の開発が望まれている。そこで我々はハイブリッド型分子動力学(MD)シミュレーションの方法を提唱し、さきがけ研究のプロジェクトとして開発を行った。特に、異なるスケールを持つ各自由度間の相互作用を正確に、かつコンピュータが扱いやすい形で表現することを目指した。

4 研究成果：

4-1. シミュレーションの概要

コロイドなど微粒子分散系のシミュレーションを行う場合、溶媒やイオンの自由度を何らかの形であらわに取り扱うか、それをあきらめて微粒子間の有効ポテンシャルに還元するかを選択がある。後者の場合、数値的には簡単であるがモデルの妥当性に問題が残る。前者がより正確なのは言うまでもないが、すべての自由度をマイクロな粒子として取り扱うことは、残念ながら世界最速のスーパーコンピュータをもってしても実現不能である。

微粒子だけを粒子として、溶媒を連続体として扱うハイブリッドなモデル化がこのような場合に有効であり(図1)、前者の自由度を完全に消去するのではなく、連続体として粗視化したメソスケールの変数として取り扱う。この場合、微粒子と溶媒の相互作用を粒子界面での境界条件として与えると

数値計算の効率が悪く、多粒子分散系の数値計算が不可能となる。これまでもいくつかの解決策が提案されているが、我々は粒子と溶媒の界面に滑らかなプロファイル(Smoothed Profile)を用いて連続的に取り扱うという単純なアイデア(図2)でこの困難を回避できることを示し、世界で初めて液晶溶媒に対する多粒子分散系のシミュレーションに成功した[2,3]。我々の方法は適応の範囲が大変広く、水中の生体分子や界面が関与する問題、機能性材料開発、マイクロ流体デバイスやマイクロラボ等の諸問題への応用が可能である。このようなメソスケールの移動現象では

帯電した微粒子のシミュレーション

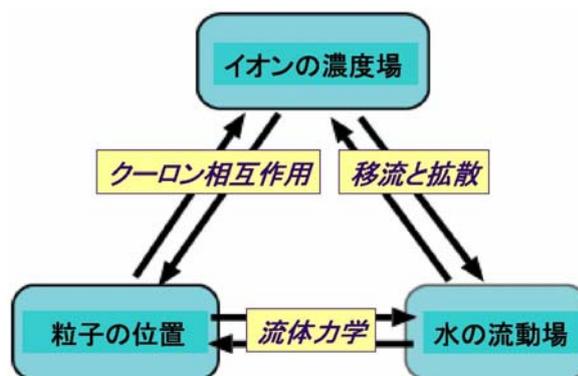
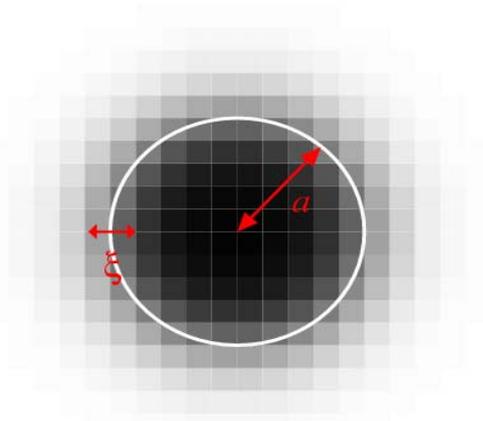


図1. ハイブリッド型シミュレーションの模式図。

荷電コロイド分散系の動的シミュレーションを行うには、「コロイド粒子の位置」「溶媒(水)の流動場」「対イオン濃度場」の3つの自由度をコンシステントに扱う必要がある。

流体のレイノルズ数が小さいために、いわゆる乱流の効果は無視することが可能である。逆に熱や物質の拡散の効果が大きくなり、イオンの分布や分子の配向など溶媒の内部自由度の影響も重要になる。多彩な現象が報告されているが理解は進んでおらず、シミュレーションによる解析が有効である。



$$\phi_i(\vec{x}) = \frac{1}{2} \left[\tanh \left(\frac{a - |\vec{x} - \vec{R}_i|}{\xi} \right) + 1 \right]$$

図2. 本来のソリッドな界面(白線)を有限の厚さ ξ をもつぼやけた界面 ϕ_i (グレイスケール)で置き換える。

4-2. 重力沈降シミュレーションの結果

各種溶媒に分散するコロイド粒子系への応用を行った。まずニュートン流体中に分散するコロイド粒子の挙動について、2次元のデモンストレーション結果を示す(図3)[3]。同様の状況下で3次元のシミュレーションも行っているが、粒子・流体間の相互作用における計算誤差は5%以内に抑えられていることを確認している。

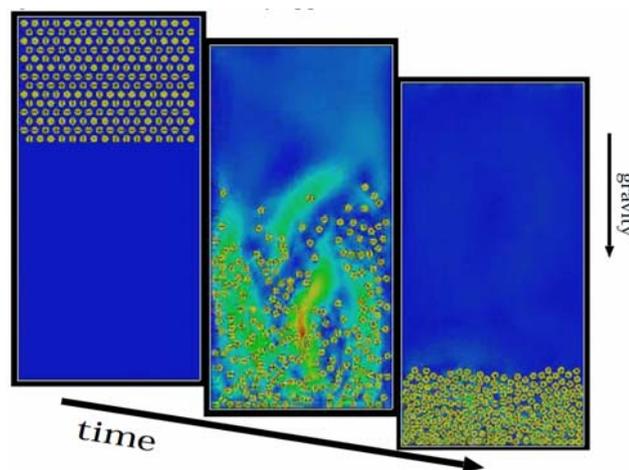


図3. 非圧縮ニュートン流体中を重力により沈降する粒子(黄丸)のダイナミクス。溶媒の流体力学効果によって渦が発生し、粒子の運動が大きく乱される。

4-3. 電気泳動シミュレーションの結果

次に電解質溶液中を電気泳動するコロイド粒子のシミュレーション結果を示す(図4)。このシミュレーションでは、コロイド粒子、対イオンの濃度場、溶媒の流動場の3つの自由度が、全てコンシステントに扱われており[4]、単純な状況を設定して理論的な解析結果と比較すると電気泳動速度に対する計算誤差は5%以内であることが確認されている。与える外部電場が弱いときには泳動速度も遅く、イオンはコロイド粒子の周りにほぼ等方的に分布しているが、外部電場が大きくなると泳動速度は早くなり、外部電場の効果と溶媒との摩擦の効果によりイオンの分布は彗星が尾を引くように非等方的になる。この効果によって、外部電場と電気泳動速度の関係に非線形性が生じる。

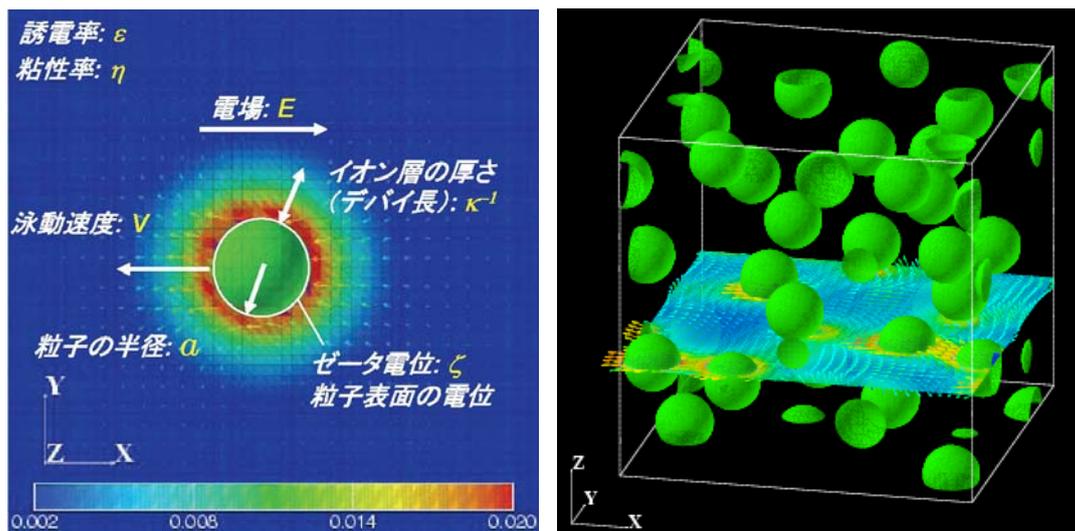


図4. 左: 電気泳動のシミュレーション。外部電場 E で右方向に速度 V で泳動したコロイド粒子周りの対イオンの分布をカラーマップで表示。外部電場、及び対イオンと溶媒との間に働く摩擦によってコロイド粒子周りのカウンターイオンの分布は非等方的になる。右: 多粒子の電気泳動。

参考文献:

- [1] R. Yamamoto, Phys. Rev. Lett. 87, 075502 (2001)
- [2] R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim, J. Phys.; Condens. Matt. 16, S1945 (2004).
- [3] Y. Nakayama and R. Yamamoto, Phys. Rev. E, 71 036707 (2005).
- [4] K. Kim and R. Yamamoto, Macromol. Theory Simul., 14, 278 (2005).

5 自己評価:

研究を開始して3年が経過して今年度が最終年度であるが、現時点までに3次元での現実的なシミュレータの開発を完了し、ソフトマター分野で革新的シミュレーション手法を開発するという当初の研究目的を100%達成することが出来たと考えている。具体的には、今回開発したハイブリッド型MD法によってこれまで超並列スーパーコンピュータを要したのと同等のシミュレーションがPC単体で実施可能になったこと、スーパーコンピュータでも実施が困難であった複雑流体分散系の直接シミュレーションが可能になったことの2点を強調したい。各種溶媒に分散するコロイド粒子への応用についてはすでに各種の系について応用・運用を開始している。数千個のコロイド粒子からなる大規模な3次元シミュレーションや、これまで解析が困難であったコロイド粒子の電気泳動の直接数値シミュレーションを実現している。

本研究はポスドク参加型ということで専門が異なる2名の若手研究者の参加を得たが、これはプロジェクトの遂行にあたって大変重要な効果をもたらした。プロジェクトが困難に直面した際に研究代表者個人では思い至らないような解決策の提案があり、議論を経てよりよい解決策へと到達

し、試行錯誤の末にプログラムへの最適な実装が行なわれた。代表者+ポスドク2名というユニットのサイズは適切であったと感じている。

我々が開発したハイブリッド型 MD シミュレーションの方法は適応の範囲が大変広く、水中の生体分子や界面が関与する問題、ナノテクノロジーによる機能性材料開発、マイクロ流体デバイスやマイクロラボ等の諸問題への応用が可能である。今後のプログラムの拡張とより速い計算機の使用によって、本研究の成果を産業界へ波及させることが可能であると考えている。

6 研究総括の見解:

ソフトマターと呼ばれる物質や、それらの集合体(複雑流体)のような機能性材料として期待されている物質の多くは、全く異なる階層構造が混在しており、最先端のシミュレーション手法を用いても、全ての階層を同じレベル(計算手法)で取り扱うことは難題である。山本研究者は粒子と溶媒の界面に滑らかなプロファイルを用いて連続的に取り扱うという従来とは全く視点を変えたアイデアで、これまで解明できなかった多粒子分散系の数値計算における問題を解決し、世界で初めて液晶溶媒に対する多粒子分散系のシミュレーションに成功した。その結果、これまでは限られた人のみが使用可能な超並列スーパーコンピュータを用いて行っていたシミュレーションが、安価で高性能な PC 単体で実施できるようになり、ソフトマターを対象とした MD シミュレーションが一部の大学や研究所だけでなく、企業でも多くの人々が利用できるようになり、産業界の活性化と発展に貢献することを期待する。

7 主な論文等:

論文:	15報
特許:	0件
受賞:	1件
国際会議招待講演:	9件(うち1件は2006年4月予定)

論文

1. Kang Kim, Yasuya Nakayama and Ryoichi Yamamoto,
Simulating electro-hydrodynamics in charged colloidal dispersions: A smoothed profile method, AIP Conference Proceedings, in print.
2. Yasuya Nakayama, Kang Kim and Ryoichi Yamamoto,
Hydrodynamic effects in colloidal dispersions studied by a new efficient direct simulation, AIP Conference Proceedings, in print.
3. K. Kim and R. Yamamoto,
Efficient simulations of charged colloidal suspensions: A density functional approach, Macromol. Theory Simul. **14**, 278 (2005).
4. Y. Nakayama and R. Yamamoto,
Simulation Method to Resolve Hydrodynamic Interactions in Colloidal Dispersions, Phys. Rev. E. **71**, 036707 (2005).
5. R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim,
A Method to Resolve Hydrodynamic Interactions in Colloidal Dispersions, Computer Physics Communications **169**, 301–304 (2005).
6. K. Kim, Y. Nakayama, and R. Yamamoto,
A Smoothed Profile Method for Simulating Charged Colloidal Dispersions, Computer Physics Communications **169**, 104–106 (2005).
7. R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim,
A Smoothed Profile Method for Colloidal Dispersions, Proceedings of the 3rd International Conference ``Computational Modeling and Simulation of Materials'' (2004).
8. Y. Nakayama and R. Yamamoto,
Resolving the Hydrodynamic Interaction in Particle Suspensions, Proceedings of the 3rd

- International Conference ``Computational Modeling and Simulation of Materials'' (2004).
9. K. Kim and R. Yamamoto,
Simulation Study of Charged Colloidal Particles in Electrolyte Solutions, Proceedings of the 3rd International Conference ``Computational Modeling and Simulation of Materials'' (2004).
 10. R. Yamamoto,
Supercooled Liquids under Shear: Computational Approach, Computer Simulation Studies in Condensed Matter Physics XVII; Ed. D.P. Landau, S.P. Lewis, and H.B. Schuttler (Springer, Berlin, 2004).
 11. K. Miyazaki, D.R. Reichman, and R. Yamamoto,
Supercooled Liquids under Shear: Theory and Simulation, Phys. Rev. E **70**, 011501 (2004).
 12. R. Yamamoto, Y. Nakayama, and K. Kim,
A Smooth Interface Method for Simulating Liquid Crystal Colloidal Dispersions, J. Phys.: Condens. Matter **16**, S1945-S1955 (2004).
 13. R. Yamamoto, K. Miyazaki, and D.R. Reichman,
Supercooled Liquids under Shear: Computational Approach, AIP Conference Proceedings **708**, 717-718 (2004).
 14. K. Miyazaki, R. Yamamoto, and D.R. Reichman,
Supercooled Liquids under Shear: A Mode-Coupling Approach, AIP Conference Proceedings **708**, 635-638 (2004).
 15. K. Kim and T. Munakata,
Glass transition of hard sphere systems—Molecular dynamics and density functional approaches, AIP Conference Proceedings **708**, 707-708 (2004).

受賞

1. 山本量一、「ソフトマターの分子動力学シミュレーション」、分子シミュレーション研究会学術賞 (2002年12月17日)

国際会議招待講演

1. R. Yamamoto,
“Strict Simulation of Motion of Colloidal Particles and Medium”
MRS 2006 Spring National Meeting
(April 17-21, 2006, San Francisco, USA)
2. R. Yamamoto,
“Smoothed profile method to simulate colloidal particles in complex fluids”
Pacifichem 2005,
(December 15-20, 2005, Honolulu, USA)
3. R. Yamamoto,
“Strict Simulations of Non-equilibrium Dynamics of Colloids”
The 14th Nisshin Engineering Particle Technology International Seminar (NEPTIS – 14) on Interactions of Colloidal Dispersions in Coating Process and Related Matters (December 4-6, 2005, Hakone, Japan)
4. R. Yamamoto
“Nonequilibrium dynamics of supercooled liquids”
Japan-France bilateral meeting on Recent advances in glassy physics
(September 26-29, 2005, Paris, France)
5. R. Yamamoto
“Strict and efficient simulation method for colloidal dispersions”
JST biorheo project 2nd Biorheo International Symposium 2005
(June 21-22, 2005, Tokyo, Japan)

6. Y. Nakayama,
"A Simulation Method to Resolve Hydrodynamic Interactions in Colloidal Dispersions"
The 1st International Workshop Hangzhou 2004 on Simulational Physics
(November 5–7, 2004, Hangzhou, China)
7. R. Yamamoto
"Supercooled Liquids under Shear: Computational Approach"
17th Annual Workshop on "Recent Developments in Computer Simulation Studies in
Condensed Matter Physics"
(February 16 – 20, 2004, Athens, USA)
8. R. Yamamoto,
**"A Smooth Interface Method for Simulating Particle Dispersions Interacting via
Liquid–Crystal Solvents"**
ESF Exploratory Workshop on Liquid Crystal Colloid Dispersions
(August 28–30, 2003, Bled, Slovenia)
9. R. Yamamoto,
"Slow Dynamics and Unusual Flow Behavior of Glassy Materials"
The 5th Annual Japanese–American Frontiers of Science (JAFoS), Co–organized by Japan
Society for the Promotion of Science and U.S. National Academy of Sciences
(December 6–8, 2002, Irvine, USA)